

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

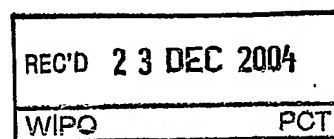
05.11.2004

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 2004年 9月 2日  
Date of Application:

出願番号 特願2004-255344  
Application Number:  
[ST. 10/C]: [JP 2004-255344]



出願人 ソニー株式会社  
Applicant(s):

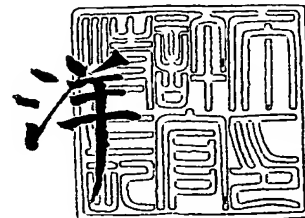
CERTIFIED COPY OF  
PRIORITY DOCUMENT

PRIORITY  
DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2004年12月13日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小川



出証番号 出証特2004-3113724

BEST AVAILABLE COPY

【書類名】 特許願  
【整理番号】 0490449106  
【提出日】 平成16年 9月 2日  
【あて先】 特許庁長官 殿  
【国際特許分類】 C09K 11/06  
C07C211/61

【発明者】  
【住所又は居所】 東京都品川区北品川 6 丁目 7 番 3 5 号 ソニー株式会社内  
【氏名】 高田 一範

【発明者】  
【住所又は居所】 東京都品川区北品川 6 丁目 7 番 3 5 号 ソニー株式会社内  
【氏名】 植田 尚之

【特許出願人】  
【識別番号】 000002185  
【氏名又は名称】 ソニー株式会社

【代理人】  
【識別番号】 100086298  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 船橋 國則  
【電話番号】 046-228-9850

【先の出願に基づく優先権主張】  
【出願番号】 特願2003-377904  
【出願日】 平成15年11月 7日

【手数料の表示】  
【予納台帳番号】 007364  
【納付金額】 16,000円

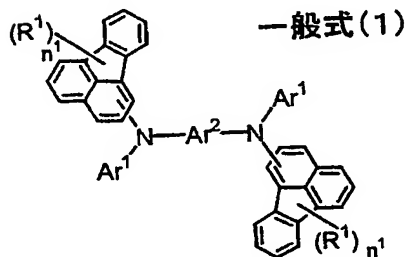
【提出物件の目録】  
【物件名】 特許請求の範囲 1  
【物件名】 明細書 1  
【物件名】 要約書 1  
【包括委任状番号】 9904452

## 【書類名】特許請求の範囲

## 【請求項 1】

下記一般式 (1) で示され、緑色発光する素子の発光層に用いられることを特徴とする有機発光材料。

## 【化 1】



ただし、一般式 (1) 中において、 $n^1$  は 0 以上 3 以下の整数であり、 $R^1$  は炭素数 10 以下のアルキル基であり、 $Ar^1$  は炭素数 20 以下の単環あるいは縮環式芳香族炭化水素から誘導され炭素数 10 以下の置換基を有しても良い一価基であり、 $Ar^2$  は環数 1 ~ 3 の単環あるいは縮環式芳香族炭化水素で構成された炭素原子数 30 以下の環集合体から誘導され炭素数 4 以下の置換基を有しても良い二価基である。

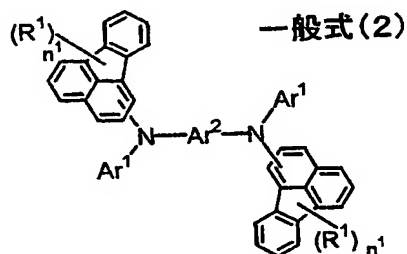
## 【請求項 2】

請求項 1 記載の有機発光材料において、  
前記一般式 (1) 中の  $Ar^1$  が無置換のフェニル基であり、 $n^1$  が 0 であり、 $Ar^2$  が無置換のビフェニルから誘導される二価基であることを特徴とする有機発光材料。

## 【請求項 3】

下記一般式 (2) で示される有機発光材料。

## 【化 2】



ただし、一般式 (2) 中において、 $n^1$  は 0 以上 3 以下の整数であり、 $R^1$  は炭素数 10 以下のアルキル基であり、 $Ar^1$  は炭素数 20 以下の単環あるいは縮環式芳香族炭化水素から誘導され炭素数 10 以下の置換基を有しても良い一価基であり、 $Ar^2$  は環数 1 ~ 3 の単環あるいは縮環式芳香族炭化水素で構成された炭素原子数 30 以下の環集合体から誘導され炭素数 4 以下の置換基を有しても良い二価基であり、前記一価基が無置換のフェニル基でありかつ前記二価基が無置換のビフェニルから誘導される二価基でありかつ 2 つのフルオランテンが位置番号 3 で窒素に結合している場合を除く。

## 【請求項 4】

請求項 3 記載の有機発光材料において、  
前記一般式 (2) に示される有機発光材料は、緑色発光の有機素子の発光層に用いられる発光性材料であることを特徴とする有機発光材料。

## 【請求項 5】

請求項 3 記載の有機発光材料において、  
前記一般式 (2) 中の  $Ar^2$  を構成する環集合体は、ビフェニル、ビナフチル、または

ビアントラセニルである

ことを特徴とする有機発光材料。

【請求項 6】

請求項 3 記載の有機発光材料において、

前記一般式 (2) 中の、 $Ar^1$  を構成する単環あるいは縮環式芳香族炭化水素から誘導される一価基が、炭素数 10 以下の置換基を有している

ことを特徴とする有機発光材料。

【請求項 7】

請求項 6 記載の有機発光材料において、

前記炭素数 10 以下の置換基は、メチル基、エチル基、*i*-プロピル基、および *t*-ブチル基から選ばれたアルキル基、またはフェニル基である

ことを特徴とする有機発光材料。

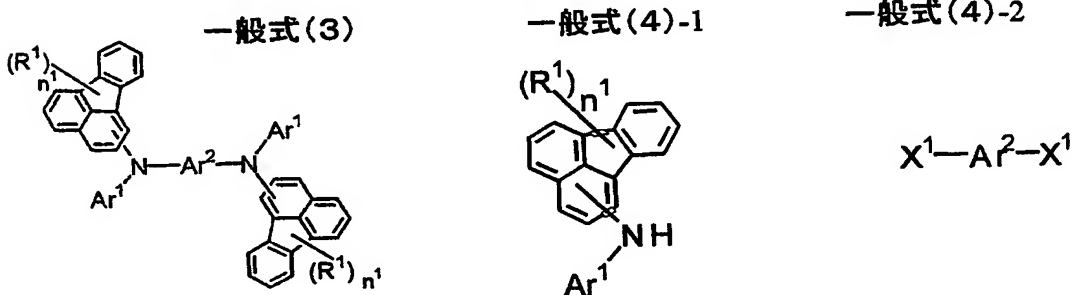
【請求項 8】

下記一般式 (3) に示す有機材料の製造方法であって、

下記一般式 (4) -1 に示す化合物および一般式 (4) -2 に示す化合物を、金属触媒を用いて反応させる

ことを特徴とする有機材料の製造方法。

【化 3】



ただし、一般式 (3) および一般式 (4) -1 中において、 $n^1$  は 0 以上 3 以下の整数であり、 $R^1$  は炭素数 10 以下のアルキル基であり、 $Ar^1$  は炭素数 20 以下の単環あるいは縮環式芳香族炭化水素から誘導され炭素数 10 以下の置換基を有しても良い一価基である。また、一般式 (3) および一般式 (4) -2 中において、 $Ar^2$  は環数 1 ~ 3 の単環あるいは縮環式芳香族炭化水素で構成された炭素原子数 30 以下の環集合体から誘導され炭素数 4 以下の置換基を有しても良い二価基である。さらに、一般式 (4) -2 中において、 $X^1$  は、ハロゲン原子あるいはペルフルオロアルキルカンスルホン酸エステル基である。

【請求項 9】

請求項 8 記載の有機材料の製造方法において、

前記一般式 (4) -2 中の  $Ar^2$  を構成する環集合体がビフェニル、ビナフチル、またはビアントラセニルのうちの 1 つである

ことを特徴とする有機材料の製造方法。

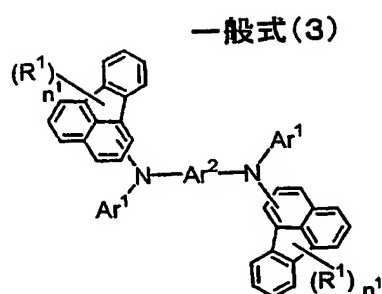
【請求項 10】

下記一般式 (3) に示す有機材料の製造方法であって、

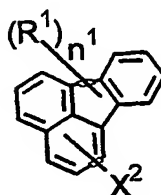
下記一般式 (5) -1 に示す化合物および一般式 (5) -2 に示す化合物を、金属触媒を用いて反応させる

ことを特徴とする有機材料の製造方法。

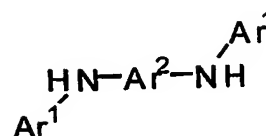
## 【化4】



一般式(5)-1



一般式(5)-2



ただし、一般式(3)および一般式(5)-1中において、 $n^1$ は0以上3以下の整数であり、 $R^1$ は炭素数10以下のアルキル基である。また、一般式(5)-1中において、 $X^2$ はハロゲン原子あるいはペルフルオロアルキカンスルホン酸エステル基である。さらに、一般式(3)および一般式(5)-2中において、 $Ar^1$ は炭素数20以下の単環あるいは縮環式芳香族炭化水素から誘導され炭素数10以下の置換基を有しても良い一価基であり、 $Ar^2$ は環数1~3の単環あるいは縮環式芳香族炭化水素で構成された炭素原子数30以下の環集合体から誘導され炭素数4以下の置換基を有しても良い二価基である。

## 【請求項11】

請求項10記載の有機材料の製造方法において、

前記一般式(5)-2中の $Ar^2$ を構成する環集合体がビフェニル、ビナフチル、またはピアントラセニルのうちの1つである

ことを特徴とする有機材料の製造方法。

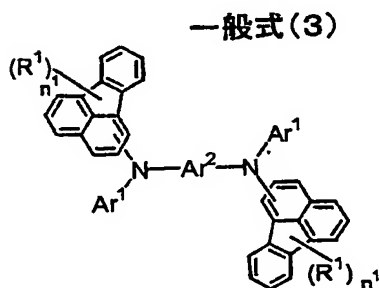
## 【請求項12】

下記一般式(3)に示す有機材料の製造方法であって、

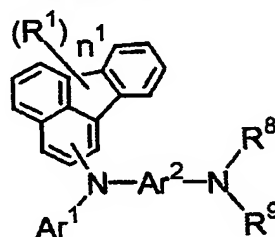
下記一般式(6)-1に示す化合物および一般式(6)-2に示す化合物を、金属触媒を用いて反応させる

ことを特徴とする有機材料の製造方法。

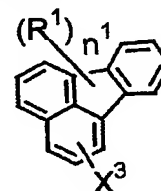
## 【化5】



一般式(6)-1



一般式(6)-2



ただし、一般式(3)、一般式(6)-1および(6)-2中において、 $n^1$ は0以上3以下の整数であり、 $R^1$ は炭素数10以下のアルキル基である。また、一般式(3)および一般式(6)-1中において、 $Ar^1$ は炭素数20以下の単環あるいは縮環式芳香族炭化水素から誘導され炭素数10以下の置換基を有しても良い一価基であり、 $Ar^2$ は環数1~3の単環あるいは縮環式芳香族炭化水素で構成された炭素原子数30以下の環集合体から誘導され炭素数4以下の置換基を有しても良い二価基である。また、一般式(6)-1中において、 $R^8$ は水素原子或いは $Ar^1$ であり、 $R^9$ は水素原子である。さらに、一般式(6)-2中において、 $X^3$ はハロゲン原子あるいはペルフルオロアルキカンスルホン酸エステル基である。

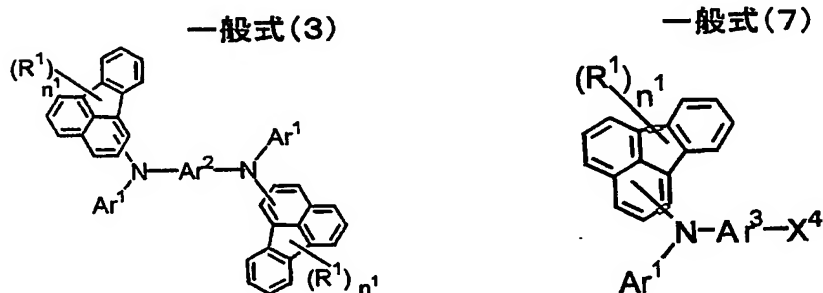
## 【請求項13】

請求項 12 記載の有機材料の製造方法において、  
前記一般式 (6) -1 中の  $Ar^2$  を構成する環集合体がビフェニル、ピナフチル、または  
ビアントラセニルのうちの 1 つである  
ことを特徴とする有機材料の製造方法。

【請求項 14】

下記一般式 (3) に示す有機材料の製造方法であって、  
下記一般式 (7) に示す化合物を、等量の金属、金属塩あるいは金属触媒を用いて反応  
させる  
ことを特徴とする有機材料の製造方法。

【化 6】



ただし、一般式 (3) および一般式 (7) 中において、 $n^1$  は 0 以上 3 以下の整数であ  
り、 $R^1$  は炭素数 10 以下のアルキル基であり、 $Ar^1$  は炭素数 20 以下の単環あるいは縮  
環式芳香族炭化水素から誘導され炭素数 10 以下の置換基を有しても良い一価基である。  
また、一般式 (3) 中において、 $Ar^2$  は環数 1 ~ 3 の単環あるいは縮環式芳香族炭化水  
素で構成された炭素原子数 30 以下の環集合体から誘導され炭素数 4 以下の置換基を有し  
ても良い二価基である。さらに、一般式 (7) 中において、 $Ar^3$  は環数 1 ~ 3 の単環あ  
るいは縮環式芳香族炭化水素から誘導され炭素数 4 以下の置換基を有しても良い二価基で  
あり、 $X^4$  はハロゲン原子あるいはペルフルオロアルキカンスルホン酸エステル基である  
。

【請求項 15】

請求項 14 記載の有機材料の製造方法において、  
前記一般式 (7) に示す化合物  $X^4$  をマグネシウムハライド、ボロン酸あるいはボロン  
酸エステルに変換した化合物と、一般式 (7) に示す化合物とを反応させる  
ことを特徴とする有機材料の製造方法。

【請求項 16】

請求項 14 記載の有機材料の製造方法において、  
前記一般式 (7) 中の  $Ar^3$  は、ベンゼン、ナフタレン、或いはアントラセンから誘導  
された二価基である  
ことを特徴とする有機材料の製造方法。

【書類名】 明細書

【発明の名称】 有機発光材料およびその製造方法

【技術分野】

【0 0 0 1】

本発明は、有機発光材料およびその製造方法に関し、特に発光素子の発光層に添加することにより緑色に発光する有機発光材料およびその製造方法に関する。

【背景技術】

【0 0 0 2】

有機ELディスプレイは、発光素子として有機EL素子を配列形成してなる表示装置であり、その鮮やかさ、薄さなどから次世代フラットパネルディスプレイの候補として、脚光を浴びている。しかしながら、その実用化にいたるためには、有機EL素子における発光効率の高効率化、発光寿命の長寿命化が必須である。このような中、有機EL素子の発光効率および発光輝度の向上を目的として、一对の電極間にベンゾフルオランテン誘導体を含む層を挟持した構成が提案されている（下記特許文献1～3参照）。

【0 0 0 3】

【特許文献1】 特開 2 0 0 2 - 6 9 0 4 4 号公報

【特許文献2】 特開 2 0 0 2 - 4 3 0 5 8 号公報

【特許文献3】 特開平 1 0 - 1 8 9 2 4 7 号公報

【0 0 0 4】

また、上記有機EL素子を用いた有機ELディスプレイにおいて、フルカラーディスプレイを実現する上では、発光効率、色純度、および信頼性の高い三原色（赤色、緑色、青色）の発光材料を用いることが不可欠である。これらのうち緑色の発光材料は、最も古くから研究されており、クマリンやキナクリドン等の、レーザー色素骨格を基本とした材料開発が続けられてきている（下記特許文献4、5参照）。

【0 0 0 5】

【特許文献4】 米国特許第 4, 7 3 6, 0 3 2 号明細書

【特許文献5】 米国特許第 5, 5 9 3, 7 8 8 号明細書

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0 0 0 6】

有機ELディスプレイの商品化にとって最も重要な課題は、高信頼性素子の獲得である。しかしながら、有機発光材料は、素子中で過酷な励起、失活課程の繰り返される条件下にさらされているため、素子構成中の有機材料の一部は化学変化を受けざるを得ない状況下であり、発光効率および信頼性の点で未だに充分でない。

【0 0 0 7】

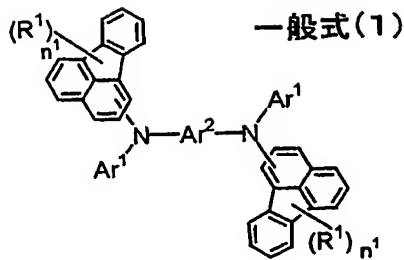
そこで本発明は、発光効率および色純度が十分に良好でかつ信頼性のより高い、緑色の有機発光材料およびその製造方法を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0 0 0 8】

このような目的を達成するための本発明の第1の有機発光材料は、下記一般式（1）で示され、緑色発光する発光素子（例えば有機EL素子）の発光層に用いられることを特徴としている。

## 【化7】



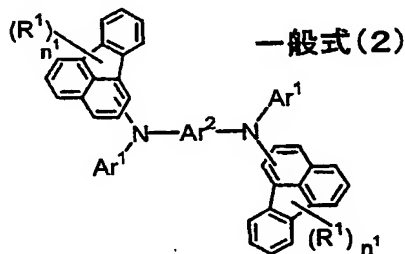
## 【0009】

この一般式(1)中において、 $n^1$ は0以上3以下の整数であり、 $R^1$ は炭素数10以下のアルキル基である。そして、 $n^1=2\sim3$ であって、フルオランテンにおける複数の置換部位(炭素原子の位置番号)に対して2~3個の $R^1$ が置換される場合、これらの $R^1$ はそれぞれが独立に炭素数10以下のアルキル基であって良い。また、 $Ar^1$ は、炭素数20以下の単環あるいは縮環式芳香族炭化水素から誘導される一価基であり、炭素数10以下の置換基を有していても良い。さらに、 $Ar^2$ は、環数1~3の単環あるいは縮環式芳香族炭化水素で構成された炭素原子数30以下の環集合体から誘導された二価基である。この二価基は、炭素数4以下の置換基を有しても良い。

## 【0010】

また、本発明の第2の有機発光材料は、下記一般式(2)で示される有機発光材料である。

## 【化8】



## 【0011】

この一般式(2)は、上述の一般式(1)と同様であり、 $n^1$ 、 $R^1$ 、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$ も上述した一般式(1)と同様である。しかしながら、第2の有機発光材料においては、一般式(2)において、 $Ar^1$ を構成する一価基が無置換のフェニル基であり、かつ $Ar^2$ を構成する二価基が無置換のビフェニルから誘導される二価基であり、かつ2つのフルオランテンがその位置番号3において窒素に結合している場合を除くこととする。

## 【0012】

また、このような第2の有機発光材料は、緑色発光する発光素子(例えば有機EL素子)の発光層に用いられる発光性材料であることとする。

## 【0013】

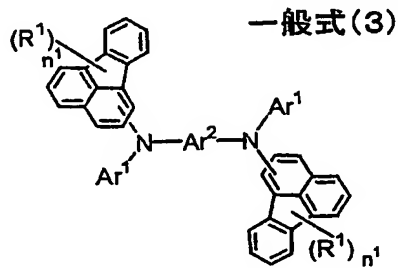
以上のような構成の本発明の第1の有機発光材料および第2の有機発光材料は、構成元素数が3であって非常に強固な分子骨格を有する。つまり、従来、緑色発光の有機発光材料として幅広く使用されているAlq3は、その構成元素数が5(炭素、水素、酸素、窒素、アルミニウム)である。また、この他にもクマリンやキナクリドン等の、従来の緑色発光の有機発光材料は、そのほとんどが構成元素数4以上である。これにより、本発明の有機発光材料は構成元素数が3と、従来の緑色発光の有機発光材料と比較して構成元素数が少なく、これによりより強固な分子骨格が実現されるのである。したがって、本発明の有機発光材料は、緑色発光の有機発光材料としての耐性が高く劣化が小さく抑えられる。しかも、この有機発光材料を緑色発光の発光層に用いることにより、色度の高い高輝度発光の発光素子(例えば有機EL素子)が構成される。



## 【0014】

また、本発明は、上述した第1の有機発光材料および第2の有機発光材料の両方を含む下記一般式(3)に示す有機材料の製造方法でもある。

## 【化9】



## 【0015】

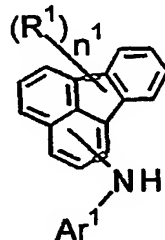
この一般式(3)は、上述の一般式(1)および一般式(2)と同様であり、 $n^1$ 、 $R^1$ 、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$ も上述した一般式(1)および一般式(2)と同様であると共に、 $Ar^1$ を構成する一価基が無置換のフェニル基であり、かつ $Ar^2$ を構成する二価基が無置換のビフェニルから誘導される二価基である場合も含んでいる。

## 【0016】

このうち、第1の製造方法は、下記一般式(4)-1に示す化合物および一般式(4)-2に示す化合物を、金属触媒を用いて反応させる製造方法である。金属触媒としては、パラジウム触媒または銅触媒が用いられる。

## 【化10】

## 一般式(4)-1



## 一般式(4)-2



## 【0017】

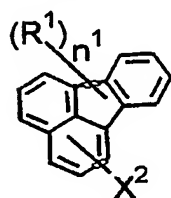
これらの一般式(4)-1および一般式(4)-2中における、 $n^1$ 、 $R^1$ 、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$ は、上述した一般式(3)における $n^1$ 、 $R^1$ 、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$ と同様であることとする。また、一般式(4)-2中における $X^1$ は、ハロゲン原子あるいはペルフルオロアルキカンシルホン酸エステル基であることとする。

## 【0018】

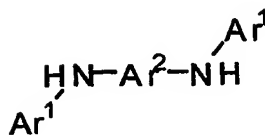
また、第2の製造方法は、下記一般式(5)-1に示す化合物および一般式(5)-2に示す化合物を、金属触媒を用いて反応させる製造方法である。金属触媒としては、パラジウム触媒または銅触媒が用いられる。

## 【化 1 1】

一般式(5)-1



一般式(5)-2



## 【0019】

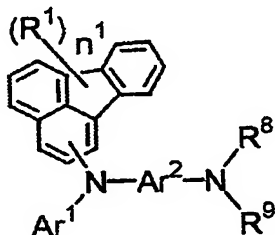
これらの一般式(5)-1および一般式(5)-2中における $n^1$ 、 $R^1$ 、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$ は、上述した一般式(3)における $n^1$ 、 $R^1$ 、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$ と同様であることとする。また、一般式(5)-1中における $X^2$ はハロゲン原子あるいはペルフルオロアルキルスルホン酸エステル基であることとする。

## 【0020】

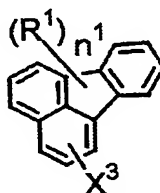
また、第3の製造方法は、下記一般式(6)-1に示す化合物および一般式(6)-2に示す化合物を、金属触媒を用いて反応させる製造方法である。金属触媒としては、金属触媒としては、パラジウム触媒または銅触媒が用いられる。

## 【化 1 2】

一般式(6)-1



一般式(6)-2



## 【0021】

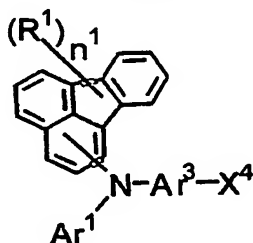
これらの一般式(6)-1および一般式(6)-2中における $n^1$ 、 $R^1$ 、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$ は、上述した一般式(3)における $n^1$ 、 $R^1$ 、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$ と同様であることとする。また、一般式(6)-1中における $R^8$ は水素原子或いは、 $Ar^1$ であり、 $R^9$ は水素原子であり、さらに、一般式(6)-2中における $X^3$ はハロゲン原子あるいはペルフルオロアルキルスルホン酸エステル基であることとする。

## 【0022】

また、第4の製造方法は、下記一般式(7)に示す化合物を、等量の金属(例えば銅)、金属塩(例えば銅、ニッケル)あるいは金属触媒(例えばニッケル、パラジウム、または銅)を用いて反応させる製造方法である。

## 【化 1 3】

一般式(7)



## 【0023】

この一般式(7)中における $n^1$ 、 $R^1$ 、 $Ar^1$ は、上述した一般式(3)における $n^1$ 、 $R^1$ 、 $Ar^1$ と同様であることとする。また、一般式(7)中における $Ar^3$ は、環数1～3の単環あるいは縮環式芳香族炭化水素から誘導され炭素数4以下の置換基を有しても良い二価基であり、 $X^4$ はハロゲン原子あるいはペルフルオロアルキカンスルホン酸エステル基であることとする。

## 【0024】

このような第4の製造方法においては、上述した前記一般式(7)に示す化合物 $X^4$ をマグネシウムハライド、ボロン酸あるいはボロン酸エステルに変換した化合物と、一般式(7)に示す化合物とを反応させても良い。

## 【0025】

以上のような第1～第4の何れかの製造方法により、一般式(3)に示される有機材料が合成される。

## 【発明の効果】

## 【0026】

以上説明した本発明の第1の有機発光材料および第2の有機発光材料によれば、耐性が高く劣化が小さく抑えられ、かつ発光効率および色純度が十分に良好な緑色発光の有機素子を得ることが可能になる。またこの結果、このような有機発光材料を有機層に用いた有機素子と共に、赤色発光素子および青色発光素子を1組にして画素を構成することにより、色再現性の高いフルカラー表示が可能になる。

## 【0027】

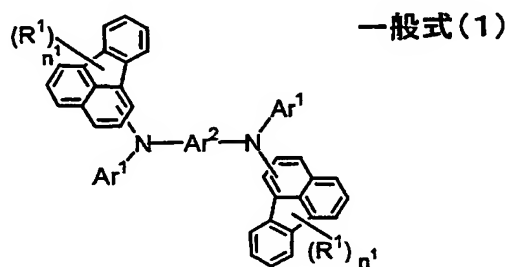
また、本発明の有機材料の製造方法によれば、上述した緑色発光の発光層を構成する材料として適する有機材料を合成することが可能である。

## 【発明を実施するための最良の形態】

## 【0028】

次に、本発明の実施の形態を説明する。本発明の第1の有機発光材料は、下記一般式(1)で示され、緑色発光の発光素子(例えば有機EL素子)の発光層に用いられることを特徴としている。

## 【化14】



## 【0029】

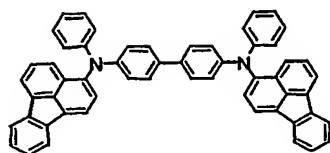
この一般式(1)中において、 $n^1$ は0以上3以下の整数であり、 $R^1$ は炭素数10以下のアルキル基である。そして、 $n^1=2\sim3$ であって、フルオランテンにおける複数の置換部位(炭素原子の位置番号)に対して2～3個の $R^1$ が置換される場合、これらの $R^1$ はそれぞれが独立に炭素数10以下のアルキル基であって良い。また、 $Ar^1$ は、炭素数20以下の単環あるいは縮環式芳香族炭化水素から誘導される一価基であり、炭素数10以下の置換基を有していても良い。さらに、 $Ar^2$ は、環数1～3の単環あるいは縮環式芳香族炭化水素で構成された炭素原子数30以下の環集合体から誘導された二価基である。この二価基は、炭素数4以下の置換基を有しても良い。

## 【0030】

そして、このような緑色発光の有機発光材料の代表的な具体例としては、一般式(1)中の $Ar^1$ が無置換のフェニル基であり、 $n^1$ が0であり、 $Ar^2$ が無置換のビフェニルから誘導される二価基である下記構造式(1)の材料を例示することができる。

## 【化15】

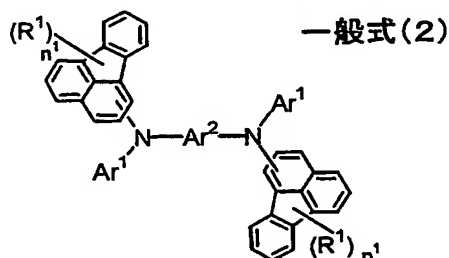
構造式(1)



## 【0031】

また、本発明の第2の有機発光材料は、下記一般式(2)で示される有機発光材料である。

## 【化16】



## 【0032】

この一般式(2)中において、 $n^1$ 、 $R^1$ 、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$ は上述した一般式(1)と同様である。すなわち、 $n^1$ は0以上3以下の整数であり、 $R^1$ は炭素数10以下のアルキル基である。そして、 $n^1=2\sim3$ であって、フルオランテンにおける複数の置換部位(炭素原子の位置番号)に対して $R^1$ が置換される場合、それぞれが独立に炭素数10以下のアルキル基であって良い。また、 $Ar^1$ は炭素数20以下の単環あるいは縮環式芳香族炭化水素から誘導される一価基であり、炭素数10以下の置換基を有しても良い。さらに、 $Ar^2$ は環数1~3の単環あるいは縮環式芳香族炭化水素で構成された炭素原子数30以下の環集合体から誘導される二価基であり、炭素数4以下の置換基を有しても良い。ただし、この一般式(2)中において、一価基が無置換のフェニル基でありかつ二価基が無置換のビフェニルから誘導される二価基でありかつ2つのフルオランテンが位置番号3で窒素に結合している場合を除くこととする。つまり、第2の有機発光材料からは、上記構造式(1)の材料が除かれるのである。これに対し、第1の有機発光材料としては、ここで詳細に説明する本第2の有機発光材料が含まれることになる。

## 【0033】

また、この有機発光材料(第2の有機発光材料)は、緑色発光する素子(例えば有機EL素子)の発光層に用いられる発光性材料であることとする。

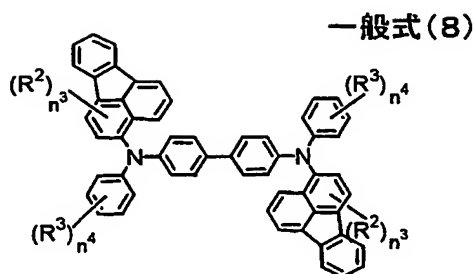
## 【0034】

特に、一般式(2)で示される中の $Ar^2$ を構成する環集合体としては、例えばビフェニル、ピナフチル、またはビアントラセニルを用いることができる。そして、 $Ar^2$ は、これらの環集合体から誘導される二価基に、炭素数4以下の置換基を有しても良い。

## 【0035】

このような第2の有機発光材料のうち、一般式(2)で示される中の $Ar^2$ を構成する環集合体がビフェニルであり、 $Ar^1$ を構成する単環あるいは縮環式芳香族炭化水素から誘導される一価基がフェニル基である場合の一例として、有機発光材料は下記一般式(8)に示される構成とすることができる。

## 【化17】



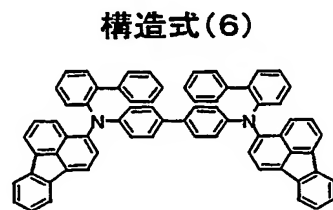
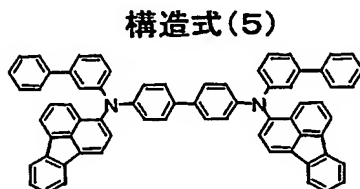
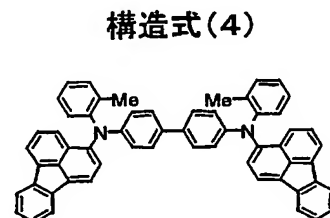
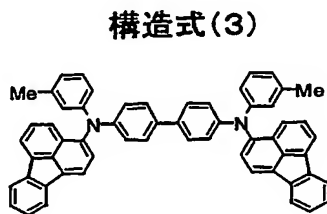
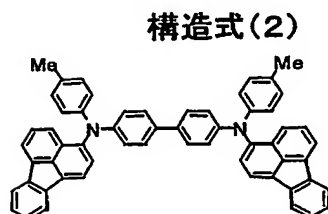
## 【0036】

この一般式(8)中における、 $R^2$ ,  $n^3$ は、一般式(2)中の $R^1$ ,  $n^1$ に相当する。また、一般式(8)中の $R^3$ は一般式(2)中の $A r^1$ が有する炭素数10以下の置換基に相当し、一般式(8)中の $n^4$ は一般式(2)の $A r^1$ が有する炭素数10以下の置換基の数に相当する。そして、この一般式(8)中においてフルオランテンの各置換部位に結合された $n^3$ 個の $R^2$ は、それぞれ独立にメチル基、エチル基、*i*-プロピル基、*t*-ブチル基から選ばれたアルキル基であり、 $n^3$ は0以上3以下の整数であることとする。また、一般式(8)中における $n^4$ 個の $R^3$ は、それぞれ独立にメチル基、エチル基、*i*-プロピル基、および*t*-ブチル基から選ばれたアルキル基、またはフェニル基であり、 $n^4$ は0以上3以下の整数であることとする。ただし、一般式(8)に示したように、一般式(2)中における $A r^1$ がフェニル基である場合には、 $n^4$ は1以上3以下の整数であることが好ましい。

## 【0037】

以上のような有機発光材料の具体例としては、下記構造式(2)～(6)の化合物を例示することができる。

## 【化18】

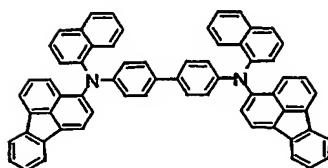


## 【0038】

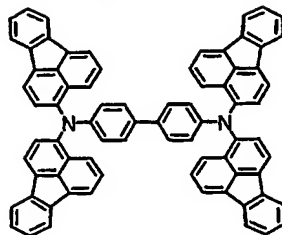
また、第2の有機発光材料のうち、上述した一般式(2)中の $A r^2$ を構成する環集合体がビフェニルである場合、 $A r^1$ を構成する単環あるいは縮環式芳香族炭化水素から誘導される一価基は、フェニル基であることに限定されることはない。例えば、この1価基は、フルオランテンやナフタレンから誘導された一価基であっても良い。このような有機発光材料の具体例としては、下記構造式(7)～(8)の化合物を例示することができる。

【化19】

構造式(7)



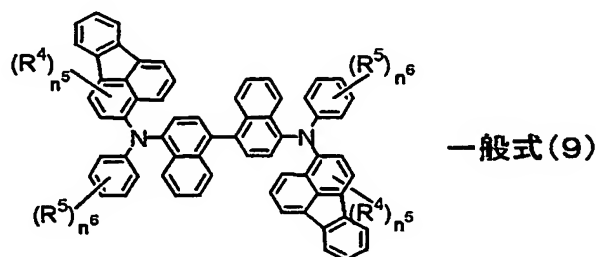
構造式(8)



【0039】

そして、一般式(2)で示される中の $Ar^2$ を構成する環集合体がビナフチルである場合、有機発光材料は下記一般式(9)に示される構成であることが好ましい。

【化20】



一般式(9)

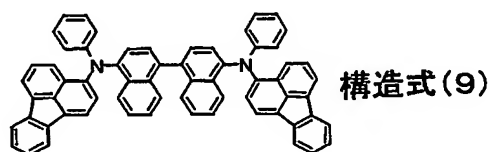
【0040】

この一般式(9)中における、 $R^4$ 、 $n^5$ は、一般式(2)中の $R^1$ 、 $n^1$ に相当する。また、一般式(9)中の $R^5$ は一般式(2)中の $Ar^1$ が有する炭素数10以下の置換基に相当し、一般式(9)中の $n^6$ は一般式(2)の $Ar^1$ が有する炭素数10以下の置換基の数に相当する。そして、この一般式(9)中においてフルオランテンの各置換部位に結合された $n^5$ 個の $R^4$ は、それぞれ独立にメチル基、エチル基、i-プロピル基、t-ブチル基から選ばれたアルキル基であり、 $n^5$ は0以上3以下の整数であることとする。また、一般式(9)中における $n^6$ 個の $R^5$ は、それぞれ独立にメチル基、エチル基、i-プロピル基、およびt-ブチル基から選ばれたアルキル基、またはフェニル基であり、 $n^6$ は0以上3以下の整数であることとする。

【0041】

このような有機発光材料の具体例としては、下記構造式(9)の化合物を例示することができる。

【化21】

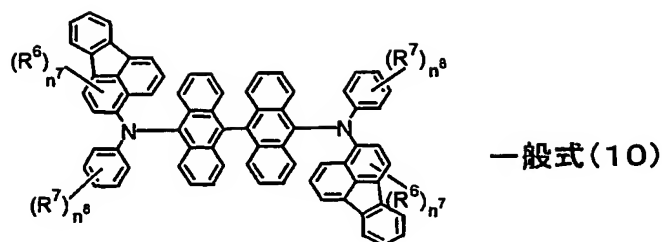


構造式(9)

【0042】

さらに、一般式(2)で示される中の $Ar^2$ を構成する環集合体がピアントラセニルである場合、有機発光材料は下記一般式(10)に示される構成であることが好ましい。

## 【化 2 2】



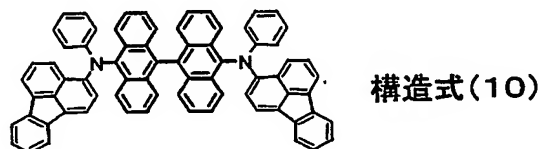
## 【0043】

この一般式(10)中における、 $R^6$ 、 $n^7$ は、一般式(2)中の $R^1$ 、 $n^1$ に相当する。また、一般式(10)中の $R^7$ は一般式(2)中の $Ar^1$ が有する炭素数10以下の置換基に相当し、一般式(10)中の $n^8$ は一般式(2)の $Ar^1$ が有する炭素数10以下の置換基の数に相当する。そして、この一般式(10)中においてフルオランテンの各置換部位に結合された $n^7$ 個の $R^6$ は、それぞれ独立にメチル基、エチル基、i-プロピル基、t-ブチル基から選ばれたアルキル基であり、 $n^7$ は0以上3以下の整数であることとする。また、一般式(10)中における $n^8$ 個の $R^7$ は、それぞれ独立にメチル基、エチル基、i-プロピル基、およびt-ブチル基から選ばれたアルキル基、またはフェニル基であり、 $n^8$ は0以上3以下の整数であることとする。

## 【0044】

このような有機発光材料の具体例としては、下記構造式(10)の化合物を例示することができる。

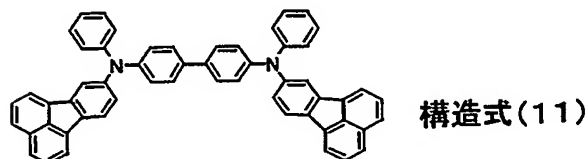
## 【化 2 3】



## 【0045】

尚、一般式(2)で示される第2の有機発光材料として、一般式(8)～(10)および構造式(1)～(9)では、2つのフルオランテンが、それぞれの炭素原子の位置番号3で窒素に結合している場合を例示した。しかしながら、第2の有機発光材料は、これに限定されることなく、例えば下記構造式(11)に示すように、他の位置番号で窒素に結合している化合物であっても良い。

## 【化 2 4】



## 【0046】

このように、フルオランテンが、他の位置番号[構造式(11)では位置番号8]で窒素に結合している場合であっても、一般式(2)における $n^1$ 、 $R^1$ 、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$ は、一般式(8)～(10)を用いて説明したと同様であることとする。

## 【0047】

以上説明した第1および第2の有機発光材料は、有機素子の発光層を構成する材料として用いられ、特に緑色発光の有機素子における発光層に発光性を有するゲスト材料として用いられる。これにより、色度の良好な緑色発光の有機素子を得ることができる。

## 【0048】

特に、以上説明した本発明の第1の有機発光材料および第2の有機発光材料は、構成元素数が3であって非常に強固な分子骨格を有する。つまり、従来、緑色発光の有機発光材料として幅広く使用されているAlq3は、その構成元素数が5（炭素、水素、酸素、窒素、アルミニウム）である。また、この他にもクマリンやキナクリドン等の、従来の緑色発光の有機発光材料は、そのほとんどが構成元素数4以上である。これにより、本発明の有機発光材料は構成元素数が3と、従来の緑色発光の有機発光材料と比較して構成元素数が少なく、これによりより強固な分子骨格が実現されるのである。したがって、本発明の有機発光材料は、緑色発光の有機発光材料としての耐性が高く劣化が小さく抑えられる。しかも、この有機発光材料を緑色発光の発光層に用いることにより、色度の高い高輝度発光の有機素子が構成される。

## 【0049】

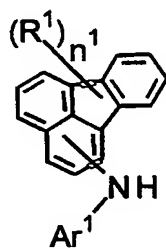
次に、上記一般式(1)に示す第1のEL発光材料および上記一般式(2)に示す第2の有機発光材料の製造方法を説明する。尚、ここで示す製造方法で得られる有機材料は、有機発光材料として用いられるものに限定されるものではない。

## 【0050】

まず、このような有機材料を得るための第1の製造方法は、(4)-1に示す化合物および一般式(4)-2に示す化合物を、金属触媒を用いて反応させる製造方法である。金属触媒としては、パラジウム触媒または銅触媒が用いられる。

## 【化25】

一般式(4)-1



一般式(4)-2



## 【0051】

これらの一般式(4)-1および一般式(4)-2中における、 $n^1$ 、 $R^1$ 、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$ は、上述した第1の有機発光材料および第2の有機発光材料の説明に用いた各一般式における $n^1$ 、 $R^1$ 、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$ と同様であることとする。また、一般式(4)-2中における $X^1$ は、ハロゲン原子あるいはペルフルオロアルキルスルホン酸エステル基であることとする。 $X^1$ がハロゲン原子である場合には、臭素またはヨウ素が用いられる。

## 【0052】

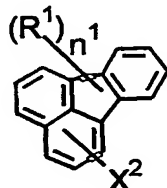
特に、このような第1の製造方法では、一般式(4)-2中の $Ar^2$ を構成する環集合体として例えば、ビフェニル、ピナフチル、およびビアントラセニルが好適に用いられる。

## 【0053】

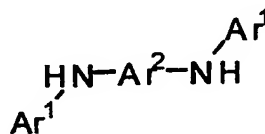
また、上記有機材料を得るための第2の製造方法は、下記一般式(5)-1に示す化合物および一般式(5)-2に示す化合物を、金属触媒を用いて反応させる製造方法である。金属触媒としては、パラジウム触媒または銅触媒が用いられる。

## 【化26】

一般式(5)-1



一般式(5)-2





## 【0054】

これらの一般式(5)-1および一般式(5)-2中における $n^1$ 、 $R^1$ 、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$ は、上述した第1の有機発光材料および第2の有機発光材料の説明に用いた各一般式における $n^1$ 、 $R^1$ 、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$ と同様であることとする。また、一般式(5)-1中における $X^2$ はハロゲン原子あるいはペルフルオロアルキカンスルホン酸エステル基であることとする。 $X^2$ がハロゲン原子である場合には、臭素またはヨウ素が用いられる。

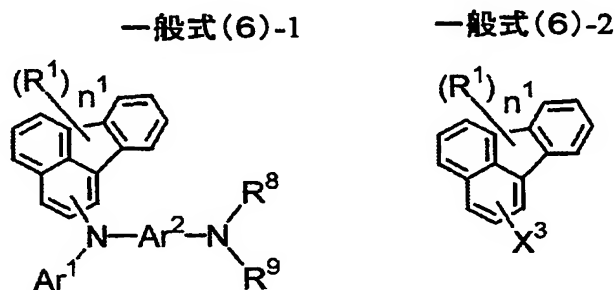
## 【0055】

特に、このような第2の製造方法では、一般式(5)-2中の $Ar^2$ を構成する環集合体として例えば、ビフェニル、ピナフチル、およびビアントラセニルが好適に用いられる。

## 【0056】

そして、第3の製造方法は、下記(6)-1に示す化合物および一般式(6)-2に示す化合物を、金属触媒を用いて反応させる製造方法である。金属触媒としては、パラジウム触媒または銅触媒が用いられる。

## 【化27】



## 【0057】

これらの一般式(6)-1および一般式(6)-2中における $n^1$ 、 $R^1$ 、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$ は、上述した第1の有機発光材料および第2の有機発光材料の説明に用いた各一般式における $n^1$ 、 $R^1$ 、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$ と同様であることとする。また、一般式(6)-1中における $R^8$ は水素原子或いは $Ar^1$ であり、 $R^9$ は水素原子であり、さらに、一般式(6)-2中における $X^3$ はハロゲン原子あるいはペルフルオロアルキカンスルホン酸エステル基であることとする。 $X^3$ がハロゲン原子である場合には、臭素またはヨウ素が用いられる。

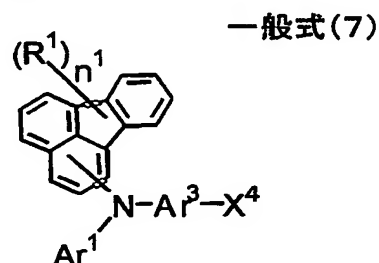
## 【0058】

特に、このような第3の製造方法では、一般式(6)-1中の $Ar^2$ を構成する環集合体として例えば、ビフェニル、ピナフチル、およびビアントラセニルが好適に用いられる。

## 【0059】

また、第4の製造方法は、下記一般式(7)に示す化合物を、等量の金属(銅)、金属(銅またはニッケル)塩あるいは金属触媒(ニッケル触媒、パラジウム触媒、または銅触媒)を用いて反応させる製造方法である。

## 【化28】



## 【0060】

これらの一般式(7)中における $n^1$ 、 $R^1$ 、 $Ar^1$ は、上述した第1の有機発光材料および第2の有機発光材料の説明に用いた各一般式における $n^1$ 、 $R^1$ 、 $Ar^1$ と同様である

こととする。また、一般式(7)中における $Ar^3$ は、環数1~3の単環あるいは縮環式芳香族炭化水素から誘導され炭素数4以下の置換基を有しても良い二価基であり、 $X^4$ はハロゲン原子あるいはペルフルオロアルキカンスルホン酸エステル基であることとする。 $X^4$ がハロゲン原子である場合には、臭素またはヨウ素が用いられる。

#### 【0061】

特に、このような第4の製造方法では、一般式(7)中の $Ar^3$ を構成する環集合体として例えば、ベンゼン、ナフタレン、或いはアントラセンから誘導された二価基が好適に用いられる。

#### 【0062】

また、このような第4の製造方法においては、上述した前記一般式(7)に示す化合物 $X^3$ をマグネシウムハライド、ボロン酸あるいはボロン酸エステルに変換した化合物と、一般式(7)に示す化合物とを反応させても良い。

#### 【実施例】

#### 【0063】

以下、本発明の実施例を説明する。ここでは、一般式(5)-1および一般式(5)-2を用いて説明した第2の製造方法によって有機発光材料を合成する方法を説明する。

#### 【0064】

##### <実施例1>

次のようにして構造式(1)の化合物を合成した。

#### 【0065】

先ず、トルエン(200ml)、トリ(*t*-ブチル)ホスフィン(0.4g, 2.0mmol)、酢酸パラジウム(0.1g, 4.5mmol)、N,N-ジフェニルベンジジン(4.8g, 14mmol)、ナトリウム*t*-ブトキシド(4.8g, 50mmol)の混合物に、3-プロモフルオランテン(9.0g, 32mmol)を3回に分けて投入し、90℃にて50時間反応加熱した。

#### 【0066】

室温まで冷却後、結晶をろ過し、少量のトルエンで洗浄した。粗品をシリカゲルクロマトグラフィーで精製し、得られた生成物を昇華精製したところ、構造式(1)の化合物(3.5g, 34%)を得た。

#### 【0067】

得られた化合物について、(a)質量分析(MS)、(b)核磁気共鳴分析(NMR)、および(c)可視紫外吸収スペクトル分析(UV-VIS)の各分析を行い、次のような結果を得た。

#### 【0068】

(a) MS [TOF]  $m/z = 736.4$  [ $M^+$ ]

(b)  $^1H$ -NMR (400MHz,  $CDCl_3$ ); 7.00 (m, 2H), 7.10-7.18 (8H), 7.20-7.28 (4H), 7.30-7.47 (12H), 7.65 (d, 2H,  $J = 8.5$  Hz), 7.70-7.80 (8H)

(c) UV-VIS ( $\lambda_{max}$ ) 443 nm, PL (max) 543 nm (in Dioxane)

#### 【0069】

上記(a)と(b)の分析結果から、実施例の合成法により、構造式(1)の化合物が合成されたことが確認された。また上記(c)の吸収スペクトルから、合成された構造式(1)の化合物のフィルムが、色度の良好な緑色発光であることが確認された。

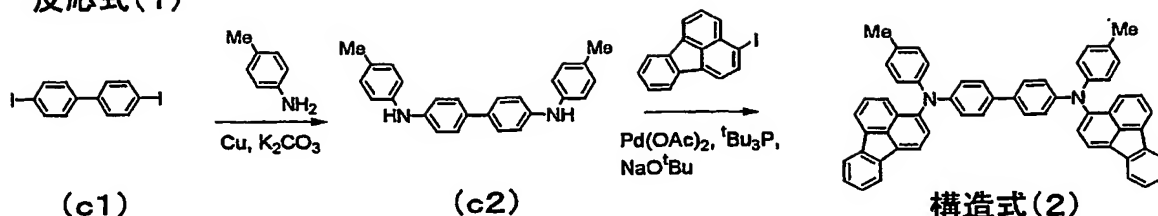
#### 【0070】

##### <実施例2>

下記反応式(1)に従って、構造式(2)の化合物を合成した。

## 【化29】

## 反応式(1)



## 【0071】

まず、(c1) 4,4'-ジヨード-1,1'-ビフェニル (35 g, 86 mmol) を、4-メチルアニリン (92 g, 86 mmol)、銅粉 (2.7 g, 43 mmol)、炭酸カリウム (12 g, 86 mmol) とともに、170℃で24時間攪拌した。反応容器にテトラヒドロフラン (400 ml) を加えてろ過し、ろ液を減圧留去した。残さを、酢酸エチル、n-ヘキサン、およびアセトニトリルで洗浄後、結晶を乾燥し、(c2) N, N'-ジフェニルベンジジン (13 g, 40%) を得た。

## 【0072】

次いで、3-ヨードフルオランテン (20 g, 70 mmol)、酢酸パラジウム (0.2 g, 0.89 mmol)、トリ-t-ブチルホスフィン (0.6 g, 3.0 mmol)、ナトリウム-t-ブトキシド (7.9 g, mmol)、乾燥トルエン (370 ml) の混合液に、(c2) N, N'-ジフェニルベンジジン (11 g, 28 mmol) を3回に分けて加え、110℃で18時間攪拌した。反応液を室温まで冷却してろ過し、ろ液を減圧留去した。残さをシリカゲルクロマトグラフィーで精製し、構造式(2)のジフルオランテニル (8.8 g, 42%) を得た。

## 【0073】

得られた化合物について、(a) 質量分析 (MS)、(b) 核磁気共鳴分析 (NMR)、および (c) 可視紫外吸収スペクトル分析 (UV-VIS) の各分析を行い、次のような結果を得た。

## 【0074】

- (a) MS [TOF]  $m/z = 763.7$  [ $(M^+)$ ]  
 (b)  $^1\text{H-NMR}$  (CDCl<sub>3</sub>)  $\delta$  (ppm); 2.16 (s, 6H), 7.06 (s, 10H), 7.08 (m, 2H), 7.29-7.43 (12H), 7.65 (d, 2H,  $J = 6.5 \text{ Hz}$ ), 7.80-7.89 (8H)  
 (c) UV-VIS ( $\lambda_{\text{max}}$ ) 451 nm、PL (max) 551 nm (in Dioxane)

## 【0075】

上記(a)と(b)の分析結果から、実施例の合成法により、構造式(2)の化合物が合成されたことが確認された。また上記(c)の吸収スペクトルから、合成された構造式(2)の化合物のフィルムが、色度の良好な緑色発光であることが確認された。

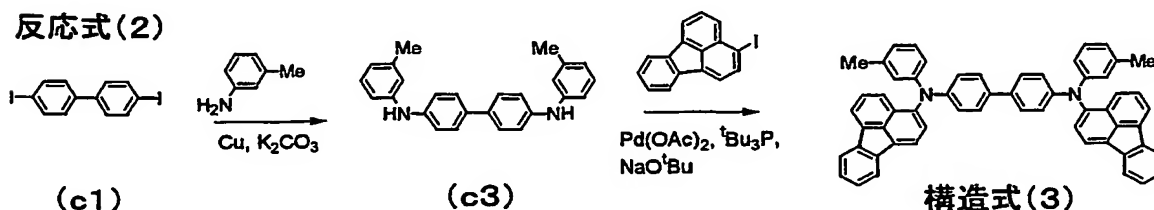
## 【0076】

## &lt;実施例3&gt;

下記反応式(2)に従って、構造式(3)の化合物を合成した。

## 【化30】

## 反応式(2)



## 【0077】

先ず、(c1) 4,4'-ジヨード-1,1'-ビフェニル (20 g, 49 mmol)、3-メチルアニリン (195 g, 1.8 mmol)、銅粉 (11 g, 160 mmol)、炭酸カリウム (25 g, 180 mmol) を、170℃で24時間加熱した。反応容器を冷却し、固形物をろ取り、キシレン、酢酸エチルで洗浄した。得られた固体をテトラヒドロフラン (400 ml) を加えてろ過し、ろ液を減圧留去した。残さを、テトラヒドロフラン-メタノールから再結晶し、さらにアセトニトリルで2回スラリー洗浄して、(c3) N, N'-ビス (3-トリル) ベンジジン (3.1 g, 17%) を得た。

#### 【0078】

次いで、3-ヨードフルオランテン (5.9 g, 18 mmol)、酢酸パラジウム (55 mg, 0.25 mmol)、トリ-*t*-ブチルホスフィン (0.2 ml, 0.82 mmol)、ナトリウム-*t*-ブトキシド (2.4 g, 20 mmol)、乾燥トルエン (100 ml) の混合液に、(c3) N, N'-ビス (3-トリル) ベンジジン (3.0 g, 8.2 mmol) を3回に分けて加え、100℃で17時間攪拌した。反応容器を冷却し、テトラヒドロフラン (450 ml) を加えてろ過し、ろ液を減圧留去した。得られた結晶をキシレンから再結晶して、構造式 (3) のジフルオランテニル体 (3.0 g, 48%) を得た。

#### 【0079】

得られた化合物について、(a) 質量分析 (MS)、(b) 核磁気共鳴分析 (NMR)、および (c) 可視紫外吸収スペクトル分析 (UV-VIS) の各分析を行い、次のような結果を得た。

#### 【0080】

- (a) MS [TOF]  $m/z = 763.7$  [ $M^+$ ]  
 (b)  $^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ )  $\delta$  (ppm); 2.13 (s, 6H), 6.82 (m, 2H), 6.92-6.98 (4H), 7.08-7.15 (6H), 7.31-7.45 (12H), 7.65 (d, 2H,  $J=8\text{ Hz}$ ), 7.81-7.80 (8H)  
 (c) UV-VIS ( $\lambda_{\text{max}}$ ) 448 nm, PL ( $\lambda_{\text{max}}$ ) 546 nm (in Dioxane)

#### 【0081】

上記 (a) と (b) の分析結果から、実施例の合成法により、構造式 (3) の化合物が合成されたことが確認された。また上記 (c) の吸収スペクトルから、合成された構造式 (3) の化合物のフィルムが、色度の良好な緑色発光であることが確認された。

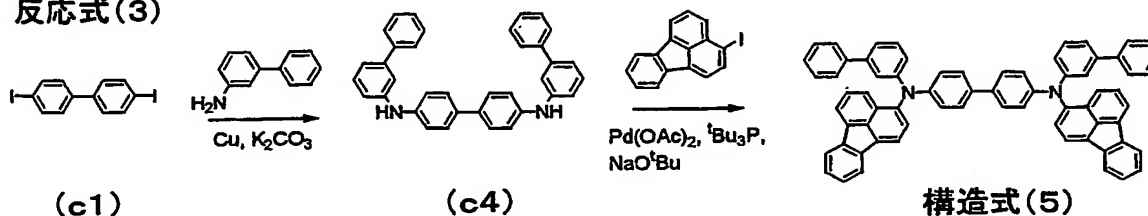
#### 【0082】

#### <実施例4>

下記反応式 (3) に従って、構造式 (5) の化合物を合成した。

#### 【化31】

#### 反応式(3)



#### 【0083】

先ず、(c1) 4,4'-ジヨード-1,1'-ビフェニル (6.0 g, 15 mmol)、3-アミノビフェニル (25 g, 150 mmol)、銅粉 (4.6 g, 73 mmol)、炭酸カリウム (10 g, 73 mmol) を、100℃で20時間加熱した。反応容器を冷却し、固形物をろ取り、キシレン、酢酸エチルで洗浄した。得られた固体をテトラヒドロフラン (400 ml) を加えてろ過し、ろ液を減圧留去した。残さを、熱キシレンスラリー洗浄して (c4) N, N'-ビス (3-ビフェニル) ベンジジン (3.0 g, 41%) を得た。

#### 【0084】

次いで、3-ヨードフルオランテン (3.0 g, 6.1 mmol)、酢酸パラジウム (4

0 mg, 0.18 mmol)、トリ-*t*-ブチルホスフィン (0.12 g, 0.59 mmol)、ナトリウム-*t*-ブトキシド (1.8 g, 19 mmol)、乾燥キシレン (110 ml) の混合液に、(c4) *N,N'*-ビス(3-ピフェニル)ベンジジン (4.4 g, 1.3 mmol) を3回に分けて加え、110℃で20時間攪拌した。反応容器を冷却し、ろ過した。得られた固体を、キシレン、酢酸エチルで洗浄後、テトラヒドロフランで抽出した。抽出液を濃縮して得られた固体を、酢酸エチル、熱キシレンでスラリー洗浄して、構造式(5)のジフルオランテニル体 (1.4 g, 26%) を得た。

#### 【0085】

得られた化合物について、(a) 質量分析 (MS)、(b) 核磁気共鳴分析 (NMR)、および (c) 可視紫外吸収スペクトル分析 (UV-VIS) の各分析を行い、次のような結果を得た。

#### 【0086】

- (a) MS [TOF]  $m/z = 887.2$  [ $M^+$ ]  
 (b)  $^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ )  $\delta$  (ppm); 7.09 (ddd, 2H,  $J = 1\text{ Hz}, 2\text{ Hz}, 8\text{ Hz}$ ), 7.19 (dt, 4H,  $J = 2\text{ Hz}, 8\text{ Hz}$ ), 7.23 (dt, 2H,  $J = 2\text{ Hz}, 8\text{ Hz}$ ), 7.26–7.49 (26H), 7.69 (d, 2H,  $J = 8\text{ Hz}$ ), 7.83–7.90 (8H)  
 (c) UV-VIS ( $\lambda_{\text{max}}$ ) 443 nm、PL(max) 541 nm (in Dioxane)

#### 【0087】

上記(a)と(b)の分析結果から、実施例の合成法により、構造式(5)の化合物が合成されたことが確認された。また上記(c)の吸収スペクトルから、合成された構造式(5)の化合物のフィルムが、色度の良好な緑色発光であることが確認された。

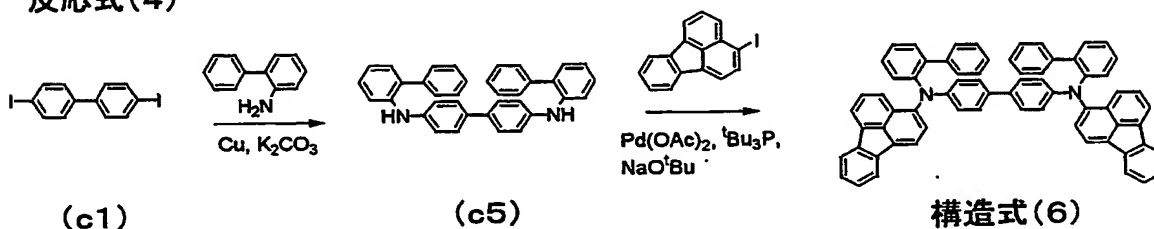
#### 【0088】

#### <実施例5>

下記反応式(4)に従って、構造式(6)の化合物を合成した。

#### 【化32】

#### 反応式(4)



#### 【0089】

先ず、(c1) 4,4'-ジヨード-1,1'-ビフェニル (11 g, 27 mmol) を、2-アミノビフェニル (46 g, 273 mmol)、銅粉 (12 g, 180 mmol)、炭酸カリウム (27 g, 200 mmol)、*o*-ジクロロベンゼン (200 ml) とともに、170℃で45時間攪拌した。反応容器にテトラヒドロフラン (500 ml) を加えてろ過し、ろ液を減圧留去した。残さを、カラムクロマトグラフィーで精製して、(c5) *N,N'*-ビス(2-ビフェニル)ベンジジン (3.4 g, 25%) を得た。

#### 【0090】

次いで、3-ヨードフルオランテン (3.4 g, 10 mmol)、酢酸パラジウム (63 mg, 0.28 mmol)、トリ-*t*-ブチルホスフィン (0.2 ml, 0.93 mmol)、ナトリウム-*t*-ブトキシド (2.7 g, 28 mmol)、乾燥キシレン (70 ml) の混合液に、(c5) *N,N'*-ビス(2-ビフェニル)ベンジジン (2.3 g, 4.7 mmol) を3回に分けて加え、110℃で20時間攪拌した。反応液を室温まで冷却してろ過し、ろ液を減圧留去した。残さをシリカゲルクロマトグラフィーで精製し、構造式(6)のジフルオランテニル体 (1.4 g, 34%) を得た。

#### 【0091】

得られた化合物について、(a) 質量分析 (MS)、(b) 核磁気共鳴分析 (NMR)、および (c) 可視紫外吸収スペクトル分析 (UV-VIS) の各分析を行い、次のような結果を得た。

【0092】

- (a) MS [TOF]  $m/z = 886.4$  [ $(M^+)$ ]  
 (b)  $^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ )  $\delta$  (ppm); 6.79 (tt, 2H,  $J = 1\text{ Hz}$ , 7 Hz), 6.84-6.89 (6H), 6.93 (d, 4H,  $J = 8\text{ Hz}$ ), 7.12-7.21 (8H), 7.24-7.42 (18H), 7.60 (d, 2H,  $J = 8\text{ Hz}$ ), 7.75 (m, 2H), 7.80 (m, 2H)  
 (c) UV-VIS ( $\lambda_{\text{max}}$ ) 448 nm、PL (max) 532 nm (in Dioxane)

【0093】

上記 (a) と (b) の分析結果から、実施例の合成法により、構造式 (6) の化合物が合成されたことが確認された。また上記 (c) の吸収スペクトルから、合成された構造式 (6) の化合物のフィルムが、色度の良好な緑色発光であることが確認された。

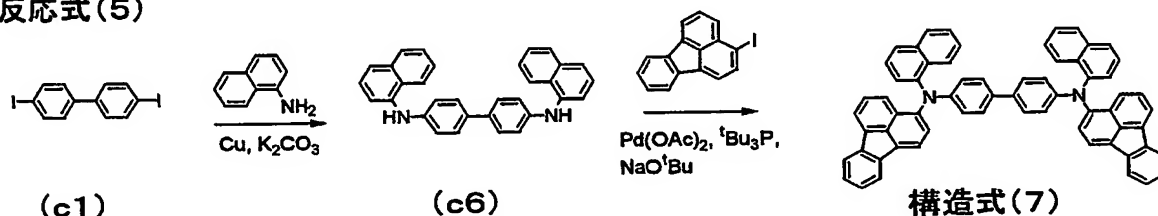
【0094】

<実施例 6>

下記反応式 (5) に従って、構造式 (7) の化合物を合成した。

【化 33】

反応式 (5)



【0095】

先ず、(c1) 4,4'-ジヨード-1,1'-ビフェニル (21 g, 52 mmol)、1-アミノナフタレン (75 g; 520 mmol)、銅粉 (17 g, 260 mmol)、炭酸カリウム (36 g, 260 mmol) をキシレン (1.5 l) とともに、100℃で20時間攪拌した。反応容器を冷却し、固形物をろ取り、キシレン、酢酸エチルで洗浄した。得られた固体をテトラヒドロフラン (500 ml) を加えてろ過し、ろ液を減圧留去した。残さを、メタノールスラリー洗浄して、(c6) N, N'-ビス(1-ナフチル)ベンジジン (3.0 g, 14%) を得た。

【0096】

次いで、3-ヨードフルオランテン (4.9 g, 15 mmol)、酢酸パラジウム (50 Mg, 0.22 mmol)、トリ-*t*-ブチルホスフィン (0.15 g, 0.74 mmol)、ナトリウム-*t*-ブトキシド (2.0 g, 21 mmol)、乾燥キシレン (120 ml) の混合液に、(c6) N, N'-ビス(1-ナフチル)ベンジジン (3.0 g, 6.9 mmol) を3回に分けて加え、110℃で20時間攪拌した。反応容器を冷却し、固形物をろ取り、キシレン、酢酸エチルで洗浄した。得られた固体をキシレンに加熱溶解させ、不要物をろ過し、ろ液を減圧留去した。得られた固体を酢酸エチル、熱キシレンで順次スラリー洗浄を行い、構造式 (7) に示すジフルオランテニル体 (2.1 g, 36%) を得た。

【0097】

得られた化合物について、(a) 質量分析 (MS)、(b) 核磁気共鳴分析 (NMR)、および (c) 可視紫外吸収スペクトル分析 (UV-VIS) の各分析を行い、次のような結果を得た。

【0098】

- (a) MS [TOF]  $m/z = 835.8$  [ $(M^+)$ ]

(b)  $^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ )  $\delta$  (ppm) ; 7.18 (d, 2H,  $J=7\text{Hz}$ ), 7.25-7.49 (22H), 7.68-7.75 (6H), 7.79 (m, 2H), 7.84-7.92 (6H), 8.06 (m, 2H)  
 (c) UV-VIS ( $\lambda_{\text{max}}$ ) 441 nm、PL(max) 543 nm (in Dioxane)

【0099】

上記(a)と(b)の分析結果から、実施例の合成法により、構造式(7)の化合物が合成されたことが確認された。また上記(c)の吸収スペクトルから、合成された構造式(7)の化合物のフィルムが、色度の良好な緑色発光であることが確認された。

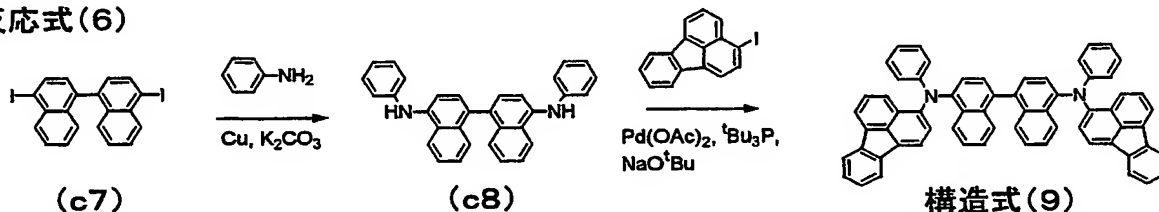
【0100】

<実施例7>

下記反応式(6)に従って、構造式(9)の化合物を合成した。

【化34】

反応式(6)



【0101】

まず、(c7) 4,4'-ジヨード-1,1'-ビナフタレン (60 g, 120 mmol)、アニリン (400 ml)、銅粉 (23 g, 360 mmol)、炭酸カリウム (49 g, 360 mmol) とともに140℃で7時間加熱した。反応液を冷却後、結晶物をろ別、テトラヒドロフラン洗浄した母液を濃縮し、シリカゲルクロマトグラフィーで精製した。得られた結晶をスラリー洗浄し、(c8) ジフェニル置換体 (12 g, 23%) を得た。

【0102】

次いで、3-ヨードフルオランテン (20 g, 61 mmol)、酢酸パラジウム (0.19 g, 0.85 mmol)、トリ-*t*-ブチルホスフィン (0.6 ml, 2.8 mmol)、ナトリウム-*t*-ブトキシド (7.9 g, 82 mmol)、トルエン (370 ml) の混合液に(c8) ジフェニル置換体 (12 g, 28 mmol) を3回に分けて加え、100℃で5時間加熱した。反応液を冷却後、結晶物をろ別、テトラヒドロフラン洗浄した母液を濃縮した。残さをシリカゲルクロマトグラフィーで精製して、構造式(9)のジフルオランテニル体 (8.6 g, 38%) を得た。

【0103】

得られた化合物について、(a) 質量分析 (MS)、(b) 核磁気共鳴分析 (NMR)、および(c) 可視紫外吸収スペクトル分析 (UV-VIS) の各分析を行い、次のような結果を得た。

【0104】

(a) MS [TOF]  $m/z = 835.7$  [ $M^+$ ]

(b)  $^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ )  $\delta$  (ppm) ; 6.95 (t, 4H,  $J=7\text{Hz}$ ), 7.11 (d, 8H,  $J=7\text{Hz}$ ), 7.27-7.36 (12H), 7.41 (d, 4H,  $J=7\text{Hz}$ ), 7.44-7.54 (12H)

(c) UV-VIS ( $\lambda_{\text{max}}$ ) 426 nm、PL(max) 516 nm (in Dioxane)

【0105】

上記(a)と(b)の分析結果から、実施例の合成法により、構造式(9)の化合物が合成されたことが確認された。また上記(c)の吸収スペクトルから、合成された構造式(9)の化合物のフィルムが、色度の良好な緑色発光であることが確認された。

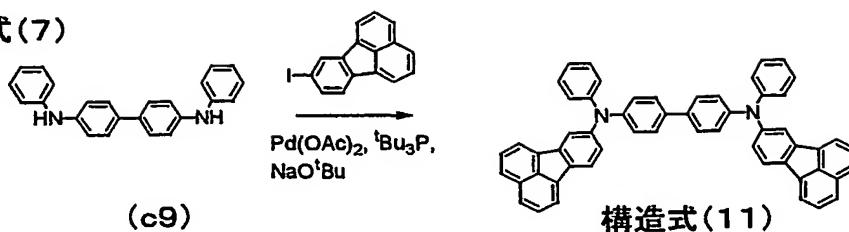
【0106】

<実施例8>

下記反応式(7)に従って、構造式(11)の化合物を合成した。

## 【化35】

## 反応式(7)



## 【0107】

先ず、8-ヨードフルオランテン (20 g, 61 mmol)、酢酸パラジウム (0.30 g, 1.3 mmol)、トリ-*t*-ブチルホスフィン (1.0 g, 5.0 mmol)、ナトリウム-*t*-ブトキシド (8.1 g, 84 mmol)、トルエン (340 ml) の混合液に (c9) ジフェニルベンジジン (9.3 g, 28 mmol) を3回に分けて加え、90℃で18時間加熱した。反応液を冷却後、結晶物をろ別、テトラヒドロフラン洗浄した母液を濃縮した。残さをアセトニトリル-テトラヒドロフランを用いて5回スラリー洗浄して精製し、構造式(11)のジフルオランテニル体 (12.2 g, 60%) を得た。

## 【0108】

得られた化合物について、(a) 質量分析 (MS)、(b) 核磁気共鳴分析 (NMR)、および (c) 可視紫外吸収スペクトル分析 (UV-VIS) の各分析を行い、次のような結果を得た。

## 【0109】

(a) MS [TOF]  $m/z = 736.2$  [ $M^+$ ]

(b)  $^1\text{H-NMR}$  (CDCl<sub>3</sub>)  $\delta$  (ppm); 7.06 (tt, 2H,  $J = 1\text{ Hz}$ , 8H<sub>z</sub>), 7.14 (dd, 2H,  $J = 2\text{ Hz}$ , 8H<sub>z</sub>), 7.22 (m, 8H), 7.31 (m, 4H), 7.51 (dt, 4H,  $J = 2\text{ Hz}$ , 9H<sub>z</sub>), 7.58 (dd, 2H,  $J = 7\text{ Hz}$ , 8H<sub>z</sub>), 7.61 (dd, 2H,  $J = 7\text{ Hz}$ , 8H<sub>z</sub>), 7.70 (d, 2H,  $J = 2\text{ Hz}$ ), 7.79-7.88 (10H)

(c) UV-VIS ( $\lambda_{\text{max}}$ ) 433 nm、PL (max) 535 nm (in Dioxane)

## 【0110】

上記 (a) と (b) の分析結果から、実施例の合成法により、構造式(11)の化合物が合成されたことが確認された。また上記 (c) の吸収スペクトルから、合成された構造式(11)の化合物のフィルムが、色度の良好な緑色発光であることが確認された。



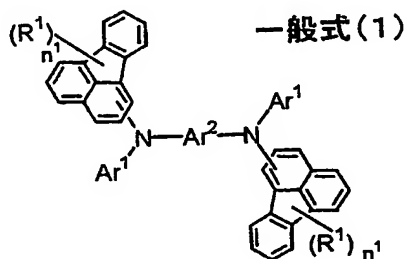
## 【書類名】要約書

## 【要約】

【課題】 発光効率および色純度が十分に良好でかつ信頼性のより高い、緑色の発光層の構成に適する有機発光材料およびその製造方法を提供することを目的とする。

【解決手段】 下記一般式（１）で示され、緑色発光する素子の発光層に用いられることを特徴とする有機発光材料。

## 【化１】



ただし、一般式（１）中において、 $n^1$ は０以上３以下の整数であり、 $R^1$ は炭素数１０以下のアルキル基であり、 $Ar^1$ は炭素数２０以下の単環あるいは縮環式芳香族炭化水素から誘導され炭素数１０以下の置換基を有しても良い一価基であり、 $Ar^2$ は環数１～３の単環あるいは縮環式芳香族炭化水素で構成された炭素原子数３０以下の環集合体から誘導され炭素数４以下の置換基を有しても良い二価基である。

【選択図】 なし

## 認定・付加情報

特許出願の番号 特願 2 0 0 4 - 2 5 5 3 4 4  
受付番号 5 0 4 0 1 4 8 8 0 3 6  
書類名 特許願  
担当官 第六担当上席 0 0 9 5  
作成日 平成 1 6 年 9 月 7 日

## &lt; 認定情報・付加情報 &gt;

## 【特許出願人】

【識別番号】 000002185  
【住所又は居所】 東京都品川区北品川 6 丁目 7 番 3 5 号  
【氏名又は名称】 ソニー株式会社

## 【代理人】

申請人  
【識別番号】 100086298  
【住所又は居所】 神奈川県厚木市旭町 4 丁目 1 1 番 2 6 号 ジェン  
トビル 3 階 船橋特許事務所  
【氏名又は名称】 船橋 國則

特願 2 0 0 4 - 2 5 5 3 4 4

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 0 0 2 1 8 5 ]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 3 0 日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都品川区北品川 6 丁目 7 番 3 5 号

氏 名

ソニー株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record.**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☒ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**